PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-114552
(43)Date of publication of application : 06.05.1998

(51)Int.Cl. C03C 27/06
E06B 3/66

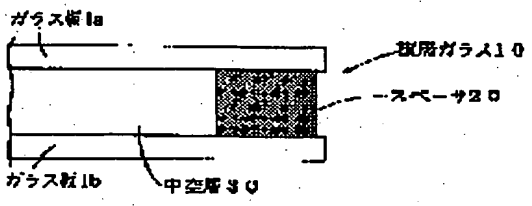
(21)Application number : 08-346292
(22)Date of filing : 25.12.1996

(71)Applicant : ASAHI GLASS CO LTD
(72)Inventor : SHIBUYA TAKASHI
NAKAGAWA HIDEKI
KODERA SHOGO
MATSUYAMA YOSHITAKA

(30)Priority
Priority number : 07339629 Priority date : 26.12.1995 Priority country : JP
08214865 14.08.1996 JP

(54) PLURAL-LAYER GLASS USING RESIN SPACER

(57)Abstract:
PROBLEM TO BE SOLVED: To eliminate the need for a secondary sealing material and to reduce the cost in the plural-layer glass formed by opposing plural glass sheets to one another to form a hollow layer with a spacer in between by forming the spacer from a specified thermoplastic resin composition.
SOLUTION: The spacer 20 is formed from a thermoplastic resin composition contg. 50-98wt.% butyl rubber (e.g. partially cross-linked butyl rubber) and 2-50wt.% crystalline polyolefin (e.g. high-density PE) (100wt.% in total) and further contg., as required, ≥200 pts.wt. of an inorg. filler (e.g. talc) based on 100 pts.wt. of the butyl rubber and crystalline polyolefin. The steam permeability coefficient of the crystalline polyolefin and/or butyl rubber is preferably controlled to ≤3,000 × 10-13cm3.cm/cm2.sec.Pa and/or that of the thermoplastic resin composition to ≤5,000 × 10-13cm3.cm/cm2.sec.Pa.



LEGAL STATUS
[Date of request for examination] 15.07.2003
[Date of sending the examiner's decision of rejection]
[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]
[Patent number]
[Date of registration]
[Number of appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

* NOTICES *

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2.**** shows the word which can not be translated.
3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]
[Claim 1] For the rate of butyl system rubber of on the multiple glass with which it ****(ed) and opposite arrangement of the glass plate of two or more sheets was carried out through the spacer so that a hollow layer might be formed between them, and as opposed to both total quantity including butyl system rubber and crystalline polyolefine, said spacer is [the rate of 50 - 98 % of the weight, and crystalline polyolefine] multiple glass using the resin spacer characterized by consisting of a thermoplastics constituent it is [constituent] 2 - 50 % of the weight.
[Claim 2] In the multiple glass with which it ****(ed) and opposite arrangement of the glass plate of two or more sheets was carried out through the spacer so that a hollow layer might be formed between them said spacer

* NOTICES *

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2.**** shows the word which can not be translated.
3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]
[0001]
[Field of the Invention] This invention relates to the multiple glass which used the spacer made of resin.
[0002]
[Description of the Prior Art] In recent years, multiple glass is goods which it is observed from a viewpoint of energy saving and the need is continuing increasing. Since many processes are required for the manufacture, compared with the usual glass plate, cost is high, and the further low cost-ization is desired.
[0003] As shown in drawing 4 , many of present multiple glass makes the glass plates 1a and 1b of at least two sheets counter through a spacer 2, and it comes to form a hollow layer among glass plates 1a and 1b. And it has come to seal the opening (crevice) which intercepted the hollow layer from the open air and consisted of the insides and spacer peripheral faces of the periphery section of those glass plates that have countered in the two-stage-sealing material of the room-temperature-setting mold represented with a polysulfide system or a silicone system by making the one-stage-sealing material 3 intervene between glass plates 1a and 1b and a spacer 2.
[0004] In the production process of multiple glass, the productivity amelioration by various simplification or automation, as a result a cost cut, etc. have so far been considered and proposed. For example, an aluminum spacer is bent, it is made a method or making the method of application of a room-temperature-setting mold sealant automate is raised. Moreover, the approach using the resin which scoured the drying agent instead of the aluminum spacer as shown in drawing 5 as a spacer 4 has also been proposed.
[0005] However, in the multiple glass using such a room-temperature-setting mold sealant, the class of spacer used is not asked but care of health of long duration is needed after multiple glass manufacture for hardening of a sealant. Therefore, care-of-health termination cannot ship a product.
[0006] Therefore, a care-of-health tooth space is provided in works, after keeping a certain fixed period product, it must ship, and time for delivery delays, and the request of a user could not necessarily be met. Moreover, in order to correspond to the need which will increase in the future, to avoid this since the care-of-health tooth space more than the former is needed and to secure the amount of supply of sufficient multiple glass, compaction of the above-mentioned care-of-health time amount is considered to be the need.
[0007]
[Problem(s) to be Solved by the Invention] From the point of low-cost-izing of multiple glass, the method of manufacturing multiple glass, without using two-stage-sealing material is proposed, using as a spacer the moldings which consists of resin which scoured the drying agent (JP,61-20501,B). However, maintenance of the configuration as multiple glass was [the spacer independent which degrees of hardness run short as a spacer, and consists of the above-mentioned resin in fact] difficult for this resin for spacers.
[0008] Moreover, JIS which scoured the drying agent to thermoplastics, such as the rigid resin in

which extrusion molding is possible, for example, vinyl chloride resin, and hot melt butyl Multiple glass using the ingredient which has the hardness of the A degree of hardness 95 as a spacer is known (JP,7-17748,A). However, this JIS When the ingredient which has the hardness of the A degree of hardness 95 is used as the spacer or sealant of multiple glass, the stress concerning the seal section or the glass plate of multiple glass is large, and there are difficulties, like the glass crack of exfoliation of the seal section or multiple glass itself arises. Therefore, the multiple glass which is satisfied only with the spacer demanded as multiple glass of all properties, such as a life, configuration maintenance nature, and a moldability, is not known for the present condition, without using two-stage-sealing material.

[0009] By the way, as JP,7-17748,A also has instantiation of hot melt butyl, butyl system rubber is used as sealants, such as a building-materials application, from the field of the adhesiveness, high weatherability, and low moisture permeability. However, depending on a use application, since a degree of hardness is low and there is cold flow nature, if independent in respect of endurance over a long period of time, there is a problem. Moreover, since melt viscosity is high, the problem of being bad also has workability. In order to raise a degree of hardness, there is also the approach of mixing various fillers, but if only addition of a filler performs high degree-of-hardness-ization, since tensile strength and tear reinforcement fall depending on the case in addition to melt viscosity going up and spoiling workability remarkably, it is not desirable.

[0010] Namely, butyl system rubber carries out the seal of the field between a glass plate and a spacer, and since it has the function to maintain airtightness, it can use it suitably as an edge sealant of multiple glass. In this case, metal spacers, such as a product made from aluminum, will usually be used from the degree of hardness of butyl system rubber being low, and butyl system rubber will be arranged as a sealant between a spacer and a glass plate. However, the production process of the need [of using a metal spacer as mentioned above] top multiple glass is complicated.

[0011] In this way, a metal spacer is not needed but development of the sealant which can simplify a production process more is desired. The multiple glass which is satisfied only with the spacer demanded as multiple glass of all properties, such as a life, configuration maintenance nature, and a moldability, is not known for the present condition, without using two stage sealing.

[0012] The purpose of this invention solves the problem of the care of health which requires the long duration after manufacture, and is to offer the multiple glass which can realize unprecedented high productivity.

[0013]

[Means for Solving the Problem] In the multiple glass with which it ****(ed) and opposite arrangement of the glass plate of two or more sheets was carried out through the spacer so that a hollow layer might be formed between them, as for this invention, the rate of butyl system rubber of as opposed to [including butyl system rubber and crystalline polyolefine] both total quantity in said spacer offers the multiple glass using the resin spacer characterized by the rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine consisting of a thermoplastics constituent which is 2 - 50 % of the weight.

[0014] In the multiple glass by which opposite arrangement was ****(ed) and carried out through the spacer so that, as for this invention, the glass plate of two or more sheets might form a hollow layer between them moreover, said spacer The rate of butyl system rubber to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine including butyl system rubber, crystalline polyolefine, and an inorganic filler 50 - 98 % of the weight, The rate of crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight, and the multiple glass using the resin spacer characterized by the rate of the inorganic filler to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine consisting of a thermoplastics constituent which is below the 200 weight sections is offered.

[0015]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, with reference to a drawing, this invention is further explained to a detail. Drawing 1 is the partial outline sectional view showing an example of the configuration of the multiple glass of this invention, and it comes to hold multiple glass 10 at

predetermined interval only by the spacer 20 which consists of a thermoplastics constituent of the following blending ratio of coal so that the hollow layer 30 may be formed for the glass plates 1a and 1b of two sheets in between. In addition, the above semantics of "being based only on a spacer 20" shall point out making unnecessary the spacer made from a two-stage-sealing material metallurgy group etc. otherwise, and shall include priming applied if needed.

[0016] The resin constituent for spacers in this invention is a resin constituent whose rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine the rate of butyl system rubber of as opposed to both total quantity including butyl system rubber and crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight.

[0017] Moreover, the rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight, and the rate of butyl system rubber of as opposed to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine including butyl system rubber, crystalline polyolefine, and an inorganic filler is the resin constituent whose rates of the inorganic filler to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine are below the 200 weight sections.

[0018] The butyl system rubber in this invention means the copolymers with a homopolymer or other monomers and those denaturation objects of an isobutylene. The copolymer (what is usually called isobutylene isoprene rubber) obtained by copolymerizing with comparatively a small amount of isoprene as a copolymer is desirable. Halogenation isobutylene isoprene rubber, partial bridge formation isobutylene isoprene rubber, etc. are one of denaturation objects. Especially desirable butyl system rubber is the copolymer of the isobutylene and isoprene which are usually called isobutylene isoprene rubber, and partial bridge formation isobutylene isoprene rubber.

[0019] The crystalline polyolefine in this invention is the copolymers with a homopolymer or other monomers and those denaturation objects of olefins, such as ethylene and a propylene, and says what has crystallinity. Other structures may be included although it is desirable that they are syndiotactic structure and isotactic structure as for the structure of a polymer. Especially as an olefin, ethylene and a propylene are desirable.

[0020] As a copolymer, there are a copolymer of two or more sorts of olefins and a copolymer of an olefin and other monomers, and the copolymer of ethylene, a propylene, and other monomers that do not check crystallinity is suitable. Moreover, as a copolymer, a block copolymer is more suitable than an alternating copolymer and a random copolymer. There is crystalline polyolefine which introduced functional groups, such as an acid-anhydride radical, a carboxyl group, and an epoxy group, as a denaturation object.

[0021] In this invention, especially desirable crystalline polyolefine is the polyethylene and polypropylene which are a substantial homopolymer. For example, low density polyethylene, medium density polyethylene, high density polyethylene, etc. can be used as polyethylene.

[0022] 30% or more of the degree of crystallinity of crystalline polyolefine is desirable, and is desirable. [especially 50% or more of] For example, the value of the typical crystallinity in the usual crystalline polyolefine is 55 - 65% with polypropylene 75 to 90% in high density polyethylene 50 to 60% at low density polyethylene. Although especially molecular weight is not limited, with polyethylene, the thing of about 100,000-400,000 is suitable in about 200,000-800,000 and polypropylene at number average molecular weight.

[0023] Thus, since polyethylene and polypropylene have high crystallinity, from butyl system rubber, it is low moisture permeability, and as compared with a butyl system rubber independent case, the melt viscosity of a constituent falls and fabrication nature of what shows melt viscosity lower especially improves. Therefore, it becomes possible again to blend various inorganic fillers, and the sealant of a high degree of hardness is realized, and these are desirable also especially from a viewpoint of economical efficiency.

[0024] In the above-mentioned resin constituent, the rate of crystalline polyolefine to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight, and is 5 - 40 % of the weight preferably. If a raise in the degree of hardness of butyl system rubber is difficult for the rate of crystalline polyolefine and it exceeds 50 % of the weight at less than 2 % of the weight, the property of crystalline polyolefine will serve as a subject and it will be hard coming to be discovered of the property of butyl system rubber.

[0025] When an inorganic filler is blended, there are few rates of crystalline polyolefine to the

total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine, and they end. For example, when the inorganic filler more than the about 50 weight section is blended to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine, as for the rate of crystalline polyolefine to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine, the target effectiveness is enough demonstrated at 2 - 20 % of the weight.

[0026] The inorganic filler of an effective dose can be substantially blended with the resin constituent in this invention containing butyl system rubber and crystalline polyolefine. An effective dose means more than 1 weight section to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine substantially. Since the melt viscosity of a constituent goes up and, as for blending too much a lot of inorganic fillers, tensile strength and tear reinforcement fall, the upper limits of loadings are the 200 weight sections, and are the 150 weight sections preferably. The minimums with the desirable loadings in inorganic filler combination are 10 weight sections.

[0027] As an inorganic filler, it is independent, or they can use what is usually used as an inorganic filler for a calcium carbonate, talc, a mica, two or more sorts of carbon black, etc., using together.

[0028] Before the resin constituent for spacers in this invention is used for an application final at least, it is very effective that the butyl system rubber contained in it and crystalline polyolefine are mixed under an elevated temperature. The elevated temperature in this mixing means the temperature beyond the crystalline melting point of crystalline polyolefine. This mixed temperature needs to be below the decomposition point of butyl system rubber, and is desirable. [of about 300 degrees C or less which is the decomposition point of usual butyl system rubber] 200 degrees C or less are especially desirable from fields, such as productivity. Therefore, the crystalline melting point of crystalline polyolefine also has desirable 200 degrees C or less again.

[0029] As for the resin ingredient for spacers, in the operating temperature limits, it is more desirable that there is as much as possible little degree-of-hardness change. In order to satisfy such requirements, as crystalline polyolefine, what has a crystalline melting point beyond anticipated-use upper limit temperature is desirable. The anticipated-use upper limit temperature of the resin ingredient for spacers is about 80 degrees C.

[0030] Since crystalline polyolefine is restrained by the cohesive force by the crystal phase in this invention, the rapid degree-of-hardness fall or flow condition which are looked at by the non-crystalline polymer also in the temperature field beyond glass transition temperature do not happen below by the crystalline melting point. On the contrary, the remarkable fall of melt viscosity is seen bordering on a crystalline melting point, and the effectiveness of making kneading nature with butyl system rubber becoming good can be expected.

[0031] The drying agent and additive in which it is generally blended with a resin ingredient required for a spacer application, and deals can be blended with such a resin constituent. As an additive here, there are fillers other than hydrolysis nature silyl radical content compounds, such as lubricant, a pigment, an antistatic agent, a tackifier, a plasticizer, an antioxidant, a thermostabilizer, an antioxidant, and a silane coupling agent, a foaming agent, and said inorganic filler etc., for example. When using especially this resin constituent for a spacer, combination of drying agents, such as a zeolite, silica gel, and an alumina, a tackifier, a plasticizer, a silane coupling agent, and various stabilizers is desirable.

[0032] It is desirable to blend especially drying agents, such as a zeolite, five to 30% of the weight into a resin constituent. Moreover, in order to give the adhesion grant effectiveness and the plasticization effectiveness, it is also desirable to carry out 5-150 weight section addition of the polyisobutylene especially below the 200 weight sections to the butyl system rubber 100 weight sections other than a polyisobutylene.

[0033] Especially the desirable component blending ratio of coal of the resin constituent for spacers is 30 - 55 % of the weight of butyl system rubber, 1 - 8 % of the weight of crystalline polyolefines, 15 - 30 % of the weight of inorganic fillers, a desiccating agent, and 20 - 40 % of the weight of additives putting the above together (of course, the rate of butyl system rubber to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine is [the rate of crystalline polyolefine] 2 - 50 % of the weight 50 to 98% of the weight).

[0034] As for the above-mentioned resin constituent, it is desirable to mix butyl system rubber and crystalline polyolefine at the temperature below the decomposition point of butyl system rubber beyond the crystalline melting point of crystalline polyolefine at least, and to be manufactured. Especially this mixed temperature has desirable 120-250 degree-C** 100-280 degrees C. You may mix to coincidence and other compounds and additives may be mixed before the mixing or to the back.
[0035] The constituent in this invention is a thermoplastic constituent substantially, and can be mixed with mixers, such as the usual melting mixing extruder and a kneader. Furthermore, it can also fabricate continuously with mixed actuation. Moreover, a constituent can be manufactured, it can consider as molding materials, such as a pellet type, and the postforming can also be performed. As a fabricating method, the melting fabricating methods, such as an extrusion-molding method and an injection-molding method, can be used.
[0036] Moreover, it arranges at the edge of the multiple glass ingredient with which opposite arrangement of the glass plate of two or more sheets was continuously carried out in the moldings with shaping actuation, and multiple glass can be manufactured. In this case, by using the hot constituent which came out of the making machine, a high adhesive property with a glass plate is acquired. Moreover, it is also applicable to a multiple glass ingredient, controlling the temperature fall of a constituent using equipments, such as an applicator. What can be heated as this equipment is desirable.
[0037] As mentioned above, the resin constituent for spacers in this invention kneads the above-mentioned component, and is prepared. It is desirable to blend a need component so that the JISA degree of hardness in 25 degrees C of the resin constituent obtained may become 90 or less on the occasion of the preparation. The reason made or less into 90 is as follows.
[0038] JIS It is JIS in order that a creep may hardly occur, when it is going to use the thermoplastics with which A degree of hardness exceeds 90 as a spacer of multiple glass. When the durability test shown in R3209 is carried out, the stress by expansion of air is applied to the adhesion interface of a glass plate and a spacer under an elevated temperature. For this reason, if adhesive strength is inadequate, even when exfoliation occurs and adhesive strength is secured temporarily, glass may break. Although it is possible to obtain only the adhesive strength which bears the stress to which a hollow layer expands by applying an elevated temperature or high pressure also with the adhesives known now, since breakage of glass occurs and productivity falls remarkably by applying elevated-temperature high pressure, the purpose of this invention aiming at manufacture cost reduction is not met.
[0039] JIS in 25 degrees C of a resin constituent on the other hand since a problem will arise to the configuration maintenance nature of multiple glass if a degree of hardness is too low As for A degree of hardness, it is desirable to blend a need component so that it may become ten or more. Furthermore, it is JIS. Even if A degree of hardness is ten or more, a plate gap may be caused when a degree of hardness is comparatively small, and the thickness of a hollow layer is thick.
[0040] The thickness of the hollow layer of the multiple glass generally used is about 4-18mm (there is much what is 6mm or 12mm). Therefore, when a degree of hardness is comparatively small, even if a plate gap does not arise in that whose thickness of a hollow layer is 6mm, a plate gap may arise in a 12mm thing. Even if the thickness of a hollow layer is 12mm, it can avoid producing a plate gap by making the above-mentioned degree of hardness or more into 40. As for especially the JISA degree of hardness of a thermoplastics spacer, in the multiple glass in this invention from this, 40 or more are desirable.
[0041] JIS Multiple glass using the resin constituent with which A degree of hardness exceeds 90 as a spacer has the large stress concerning a glass plate. Therefore, JIS With any multiple glass using a glass plate with 5mm [in thickness specified by R3209], and a thickness of 3mm, a glass crack arises during an acceleration durability test.
[0042] On the other hand, JIS A degree of hardness does not generate a glass crack in the above-mentioned trial with the multiple glass for which multiple glass using the resin constituent of 90 as a spacer used the glass plate with a thickness of 5mm. On the other hand, the glass crack may have generated the multiple glass using a glass plate with a thickness of 3mm in the

above-mentioned trial. Therefore, JIS of the resin constituent for spacers As for the upper limit of A degree of hardness, 90 is desirable. Moreover, JIS In the above-mentioned trial, a glass crack is generated with neither of the multiple glass which, as for multiple glass using the resin constituent whose A degree of hardness is 75 as a spacer, used the glass plate with 5mm [in thickness], and a thickness of 3mm. Since thickness is 3mm, the glass plate for multiple glass generally used now is JIS of the resin constituent for spacers. The range of 40-75 is more suitable for A degree of hardness.

[0043] moreover, the steam transmission coefficient as the whole resin constituent -- 5000 -- in order to maintain the dew-point engine performance further below x10-13 cm3, cm/cm2, and sec-Pa -- a steam transmission coefficient -- 500 -- it is desirable to carry out to below x10-13 cm3, cm/cm2, and sec-Pa.

[0044] in this case, butyl system rubber -- that steam transmission coefficient -- 3000 -- it is desirable that they are below x10-13 cm3, cm/cm2, and sec-Pa. moreover, the steam transmission coefficient of crystalline polyolefine -- 3000 -- below x10-13 cm3, cm/cm2, and sec-Pa -- desirable -- 500 -- below x10-13 cm3, cm/cm2, and sec-Pa are still more desirable.

[0045] Like heat reflective glass and low reflection factor glass, the glass plates used for the configuration of the multiple glass of this invention are glass plates, such as an aperture currently used widely and a door, tempered glass, a glass laminate, metal wired glass, heat absorbing glass, the glass plate that coated the inside with a metal or other inorganic substances thinly, the acrylic resin plate called organic glass, a polycarbonate plate, etc., and are not usually further limited especially to building materials, a car, etc. Moreover, multiple glass may consist of glass plates of two sheets, and may consist of glass plates of three or more sheets.

[0046] The multiple glass of this invention applies the adhesives which dissolved in the solvent to the glass side where a spacer contacts if needed, and is air-dried. As shown in drawing 2 , it is predetermined spacing (for example, 6mm) about the glass plates 1a and 1b of two sheets. With extrusion using the general-purpose extruder which has the cylinder of a suitable diameter as held to 12mm, next shown in drawing 3 from the die which is made to carry out melting of the resin constituent of said this invention at the temperature of 150-200 degrees C, and has a suitable tip configuration It is formed by making it intervene between the glass plates of two sheets, and cooling.

[0047] The approach of this double stratification is an example, and the manufacture approach of the multiple glass of this invention itself is not limited to the above-mentioned approach, for example, it fabricates the spacer of a request configuration beforehand from said resin constituent, with the glass plate of two sheets, it may carry out thermocompression bonding of this, and may form it.

[0048]

[Example] Next, although an example and the example of a comparison are given and this invention is explained still more concretely, this invention is not limited to these examples.

[0049] Butyl system rubber and crystalline polyolefine are included first. example [of the resin constituent for << spacers] >> -- The resin constituent for spacers whose rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine the rate of butyl system rubber to both total quantity is 2 - 50 % of the weight, The rate of butyl system rubber to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine including butyl system rubber, crystalline polyolefine, and an inorganic filler 50 - 98 % of the weight, The rate of crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight, and the example about the resin constituent for spacers whose rates of the inorganic filler to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine are below the 200 weight sections is shown. The examples 1-5 of the following presentation are examples, and the examples 6-10 of a presentation are examples of a comparison.

[0050] Add the drying agent which consists of 4A mold desiccation zeolite powder in the constituent shown in the [example 1 of presentation] table 1 after kneading the component except a drying agent, knead further, homogeneity is made to distribute a drying agent, and it is JIS. A degree of hardness obtained the resin constituent for spacers of 65.

[0051] In the same procedure as the example 1 of the [examples 2-10 of presentation] presentation, the resin constituent for spacers whose JISA degree of hardness after zeolite

mixing is the value shown in Table 2 was obtained by the combination shown in Table 1.
[0052] In addition, it sets to these tables and isobutylene isoprene rubber is Mooney viscosity 47. The isobutylene isoprene rubber and partial bridge formation isobutylene isoprene rubber which are ML(1+8) 100degree C are Mooney viscosity 45. The partial bridge formation isobutylene isoprene rubber which is ML(1+3) 121degree C, and HDPE are high density polyethylene which is a melt index 20, 130 degrees C of crystalline melting points, and about 80% of crystallinity. Moreover, JIS A degree of hardness is JIS. It measured according to K6301. The numeric value of a presentation of an ingredient expresses weight %.
[0053] The example which produced multiple glass using example [of << multiple glass] >>, next the resin constituent for spacers of the above-mentioned examples 1-10 of a presentation is shown. The following examples 1-5 are examples, and Examples 6-10 are examples of a comparison.
[0054] [Example 1] Spacing of 6mm or 12mm was maintained using the extruder for rubber which has a cylinder with a diameter of 40mm for the resin constituent for spacers of the example 1 of a presentation between 3mm in the size of 320x500mm which carried out priming of the spacer contact section beforehand, and thickness, and two 5mm float glass plates, extrusion molding of the spacer was carried out to the periphery section of a glass plate, and the multiple glass of this invention was obtained.
[0055] In the same procedure as the example 1 of [Examples 2-10], others obtained multiple glass like Example 1 using the resin constituent for spacers of the examples 2-10 of a presentation.
[0056] [The evaluation approach]
Plate [-proof] gap trial: The glass plate of one side of each obtained multiple glass was fixed, the 13kg load was applied to the glass plate of another side, and the downward movement magnitude of the glass plate by the side of a load-ed was measured on 25-degree C temperature conditions. The movement magnitude considered as success what is 0.5mm or less in 20 minutes.
Acceleration durability test: JIS According to R3209, the multiple glass which has a spacer with a thickness of 6mm was followed.
Dew-point measurement: JIS According to the equipment and the approach of a publication, it measured to R3209.
These measurement results are shown in Table 2.
[0057]
[Table 1]

	ブチル系ゴム				HDPE	無機フィラー		添加物	
	ブチルゴム	部分架橋ブチルゴム	PIB-A	PIB-B		タルク	カーボンブラック	粘着付与剤	ゼオライト
組成例1			25.6	17.0	4.2	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例2	29.8		4.3		12.8	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例3	15.6		15.6		15.8	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例4		21.3	4.2		21.3	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例5	45.9				0.9	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例6		46.8				10.6	10.6	10.6	21.4
組成例7		11.5			46.0	10.6	10.6		21.3
組成例8		5.6			51.9	10.6	10.6		21.3
組成例9		21.3	25.6			10.6	10.6	10.6	21.4
組成例10		8.5	4.2		34.0	10.6	10.6	10.6	21.3

[0058]
[Table 2]

	スペーサ硬度	複層ガラス評価項目							
		A	B	C	D	E	F	G	H
例1	65	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例2	75	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例3	90	a	a	a	a	合格	0	5	なし
例4	90	a	-55	-54	-40	合格	0	4	なし
例5	20	a	a	a	a	合格	0	0	c
例6	10	a	a	a	a	合格	0	0	c
例7	95	a	a	a	中止	b	0	4	なし
例8	95	a	a	a	中止	b	11	19	なし
例9	0	a	a	a	a	合格	0	0	あり
例10	95	-60	10	中止	中止	b	9	14	なし

[0059] Front Naka, evaluation-criteria A-H, and evaluation result a-c show the semantics of a degree.

[0060]

A: An initial dew-point (what has a dew-point high [6 ******]), B:JIS After [R3209 acceleration durability test 1 termination] dew-point (degree C), C:JIS An after [R3209 acceleration durability test 2 termination] dew-point (degree C), D:JIS After [R3209 acceleration durability test 3 termination] dew-point (degree C), E:JIS3 judging, F : The glass crack of the multiple glass of the thickness under durability test (5mm / 6mm / 5mm: a glass plate / hollow layer / glass plate) (100 inside of the body), G: The glass crack (100 inside of the body) of the multiple glass of the thickness under durability test (3mm / 6mm / 3mm: a glass plate / hollow layer / glass plate), H:plate gap, -60 degrees C or less of a:dew-points, b : Since the spacer is hard, As for a glass crack, the thickness of 12mm of generating and c:hollow layer is those with a plate gap, and 6mm has no plate gap.

[0061] From the result of Table 2, butyl system rubber and crystalline polyolefine are included for a spacer. The resin constituent whose rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine the rate of butyl system rubber to both total quantity is 2 - 50 % of the weight, Or butyl system rubber, crystalline polyolefine, and an inorganic filler are included. The rate of butyl system rubber to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine 50 - 98 % of the weight, By fabricating from the resin constituent whose rates of the inorganic filler to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine the rate of crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight, and are below the 200 weight sections A plate gap etc. can be prevented while being able to reduce the glass crack of multiple glass. In this case, in a spacer, only with the above-mentioned resin constituent, there is no rise of a dew-point and the multiple glass with which the configuration of multiple glass was held is obtained.

[0062] In addition, the rate of butyl system rubber of as opposed to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine in the resin constituent for spacers used for the multiple glass of Example 5 is [the rate of crystalline polyolefine] 1.92 % of the weight 98.08% of the weight. On the other hand, in the multiple glass of Example 5, some plate gap may arise depending on the thickness of a hollow layer. Although the rate of butyl system rubber to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine also contains substantially the blending ratio of coal of the above-mentioned example 5 of a presentation from this, as for saying [that the rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight], it turns out that the blending ratio of coal like the examples 1-4 of a presentation is desirable.

[0063]

[Effect of the Invention] According to this invention, the activities filled up with two-stage-

sealing material are reduced, care-of-health time amount is unnecessary, the routing counter at the time of multiple glass manufacture can be reduced sharply, and multiple glass is offered by high productivity and high low cost.

[Translation done.]

* NOTICES *

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2.**** shows the word which can not be translated.
3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]
[Drawing 1] The partial outline sectional view showing an example of the configuration of the multiple glass of this invention
[Drawing 2] The partial outline sectional view showing the configuration of multiple glass before double-stratifying using the spacer which consists of a thermoplastics constituent
[Drawing 3] The schematic diagram of the extruder used for melting of a thermoplastics constituent in this invention
[Drawing 4] The sectional view showing an example of the configuration of conventional multiple glass
[Drawing 5] The sectional view showing an example of the configuration of conventional multiple glass
[Description of Notations]
10: Multiple glass
1a, 1b: Glass plate
20: Spacer
30: Hollow layer

[Translation done.]

(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報（A）　(11)特許出願公開番号

特開平10－114552

(43)公開日　平成10年(1998)5月6日

(51)Int. Cl.⁶　識別記号　FI

C03C 27/06　101　C03C 27/06　101 Z

E06B 3/66　E06B 3/66

審査請求 未請求　請求項の数6　OL　(全8頁)

(21)出願番号　特願平8-346292

(22)出願日　平成8年(1996)12月25日

(31)優先権主張番号　特願平7-339629

(32)優先日　平7(1995)12月26日

(33)優先権主張国　日本（JP）

(31)優先権主張番号　特願平8-214865

(32)優先日　平8(1996)8月14日

(33)優先権主張国　日本（JP）

(71)出願人　000000044
旭硝子株式会社
東京都千代田区丸の内2丁目1番2号

(72)発明者　磯谷 崇
神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地
旭硝子株式会社中央研究所内

(72)発明者　中川 秀樹
神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地
旭硝子株式会社中央研究所内

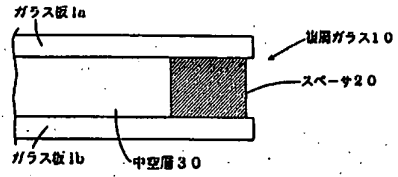
(72)発明者　小寺 省吾
神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地
旭硝子株式会社中央研究所内

(74)代理人　弁理士 泉名 謙治

最終頁に続く

(54)【発明の名称】樹脂スペーサを用いた複層ガラス

(57)【要約】
【課題】複層ガラスのこれまでにない高い生産性を実現し、複層ガラスをより安価にかつ簡便に提供する。
【解決手段】スペーサ２０が、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が５０～９８重量％、結晶性ポリオレフィンの割合が２～５０重量％である熱可塑性樹脂組成物からなる複層ガラス１０。



1

【特許請求の範囲】
【請求項１】２枚以上のガラス板が、その間に中空層を形成するようにスペーサを介して隔置されて対向配置された複層ガラスにおいて、前記スペーサは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が５０～９８重量％、結晶性ポリオレフィンの割合が２～５０重量％である熱可塑性樹脂組成物からなることを特徴とする樹脂スペーサを用いた複層ガラス。
【請求項２】２枚以上のガラス板が、その間に中空層を形成するようにスペーサを介して隔置されて対向配置された複層ガラスにおいて、前記スペーサは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が５０～９８重量％、結晶性ポリオレフィンの割合が２～５０重量％であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計１００重量部に対する無機フィラーの割合が２００重量部以下である熱可塑性樹脂組成物からなることを特徴とする樹脂スペーサを用いた複層ガラス。
【請求項３】結晶性ポリオレフィンがポリエチレン、ポリプロピレンまたはそれらの変性体から選ばれる１種以上の重合体からなる、請求項１または２の複層ガラス。
【請求項４】結晶性ポリオレフィンの水蒸気透過係数が、3000×10^{-13} cm³・cm／cm²・sec・Pa以下である請求項１、２または３の複層ガラス。
【請求項５】ブチル系ゴムの水蒸気透過係数が、3000×10^{-13} cm³・cm／cm²・sec・Pa以下である請求項１、２、３または４の複層ガラス。
【請求項６】前記熱可塑性樹脂組成物の水蒸気透過係数が、5000×10^{-13} cm³・cm／cm²・sec・Pa以下である請求項１、２、３、４または５の複層ガラス。
【発明の詳細な説明】
【０００１】
【発明の属する技術分野】本発明は、樹脂製スペーサを用いた複層ガラスに関する。
【０００２】
【従来の技術】近年、複層ガラスは省エネルギーの観点から注目され、その需要が増加しつづけている商品である。その製造には多くの工程が必要であるため、通常のガラス板に比べコストが高く、さらなる低コスト化が望まれている。
【０００３】現在の複層ガラスの多くは、図４に示すように、最低２枚のガラス板１ａ，１ｂをスペーサ２を介して対向させ、ガラス板１ａ，１ｂとの間に中空層を形成してなる。そして、ガラス板１ａ，１ｂとスペーサ２との間に一次シール材３を介在させることによって、中空層を外気から遮断し、対向しているそれらのガラス板の周縁部の内面とスペーサ周面とで構成された空隙

2

（凹部）をポリスルフィド系またはシリコーン系で代表される常温硬化型の二次シール材で封着してなっている。
【０００４】これまで、複層ガラスの製造工程において、種々の簡略化あるいは自動化による生産性改良、ひいてはコストダウンなどが検討され、提案されてきた。例えば、アルミニウムスペーサを折り曲げ方式にしたり、常温硬化型シール材の塗布方法を自動化させることがあげられる。また、図５に示すようにアルミニウムスペーサの代わりに乾燥剤を練り込んだ樹脂をスペーサ４として用いる方法も提案されてきている。
【０００５】しかし、こうした常温硬化型シール材を用いた複層ガラスでは、用いられるスペーサの種類を問わず、複層ガラス製造後、シール材の硬化のために長時間の養生を必要とする。そのため養生終了までは製品を出荷できない。
【０００６】したがって、工場内に養生スペースを設け、ある一定期間製品を保管した後に出荷しなければならず、納期が長期化し、客先の要望に必ずしも応え得なかった。また、将来的に増加する需要に対応するには、これまで以上の養生スペースが必要となるため、これを回避し、充分な複層ガラスの供給量を確保するためには、上記の養生時間の短縮が必要と考えられている。
【０００７】
【発明が解決しようとする課題】複層ガラスの低コスト化の点からは、乾燥剤を練り込んだ樹脂からなる成形物をスペーサとして用い、二次シール材を用いずに複層ガラスを製造する方法が提案されている（特公昭６１－２０５０１）。しかし、このスペーサ用樹脂はスペーサとしては硬度が不足し、実際には上記樹脂からなるスペーサ単独では複層ガラスとしての形状の維持が困難であった。
【０００８】また、押出成形可能な硬質樹脂、例えば、塩化ビニル樹脂やホットメルトブチルなどの熱可塑性樹脂に乾燥剤を練り込んだＪＩＳ　Ａ硬度９５の硬さを有する材料をスペーサとして用いる複層ガラズが知られている（特開平７－１７７４８）。しかし、このＪＩＳＡ硬度９５の硬さを有する材料を、複層ガラスのスペーサまたはシール材として用いた場合には、複層ガラスのシール部またはガラス板にかかる応力が大きく、シール部の剥離や複層ガラス自体のガラス割れが生じるなどの難点がある。したがって現状では、二次シール材を用いずに、複層ガラスとして要求されるスペーサのみで寿命、形状維持性、成形性などの特性を全て満足する複層ガラスは知られていない。
【０００９】ところで、特開平７－１７７４８にもホットメルトブチルの例示があるように、ブチル系ゴムはその粘着性、高耐候性および低透湿性という面から建材用途などのシール材として用いられている。しかし、硬度が低くコールドフロー性があるため、使用用途によって

は長期耐久性の点で単独では問題がある。また溶融粘度が高いために、作業性が悪いという問題もある。硬度を向上させるために各種フィラーを混合する方法もあるが、フィラーの添加のみによって高硬度化を行うと、溶融粘度が上昇し作業性を著しく損なうことに加え、場合によっては、引張り強度や引き裂き強度が低下するため望ましくない。

【0010】すなわち、ブチル系ゴムはガラス板とスペーサとの間の面をシールし、気密性を維持する機能を有することから、複層ガラスの端部シール材として好適に用いることができる。この場合、ブチル系ゴムの硬度が低いことより通常はアルミニウム製などの金属製のスペーサが用いられ、スペーサとガラス板との間にブチル系ゴムがシール材として配置されることになる。しかし、前述のように金属製スペーサを用いる必要上複層ガラスの製造工程が複雑化する。

【0011】こうして、金属製スペーサを必要とせず、製造工程をより簡略化しうるシール材の開発が望まれている。現状では、二次シールを用いずに、複層ガラスとして要求されるスペーサのみで寿命、形状維持性、成形性などの特性を全て満足する複層ガラスは知られていない。

【0012】本発明の目的は、製造後の長時間を要する発生の問題を解消し、これまでにない高い生産性を実現できる複層ガラスを提供することにある。

【0013】

【課題を解決するための手段】本発明は、2枚以上のガラス板が、その間に中空層を形成するようにスペーサを介して隔置されて対向配置された複層ガラスにおいて、前記スペーサは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%である熱可塑性樹脂組成物からなることを特徴とする樹脂スペーサを用いた複層ガラスを提供する。

【0014】また、本発明は、2枚以上のガラス板が、その間に中空層を形成するようにスペーサを介して隔置されて対向配置された複層ガラスにおいて、前記スペーサは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以下である熱可塑性樹脂組成物からなることを特徴とする樹脂スペーサを用いた複層ガラスを提供する。

【0015】

【発明の実施の形態】以下、図面を参照して本発明をさらに詳細に説明する。図1は、本発明の複層ガラスの構成の一例を示す部分概略断面図であり、複層ガラス10は、2枚のガラス板1aおよび1bが、間に中空層30が形成されるように、以下の配合割合の熱可塑性樹脂組成物からなるスペーサ20のみによって所定の間隔に保持されてなる。なお、上記の「スペーサ20のみによる」の意味は、他に二次シール材や金属製のスペーサなどを不要とすることを指すものであり、必要に応じて適用されるプライマー処理を含むものとする。

【0016】本発明におけるスペーサ用樹脂組成物は、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%である樹脂組成物である。

【0017】また、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以下である樹脂組成物である。

【0018】本発明におけるブチル系ゴムとは、イソブチレンの単独重合体や他の単量体との共重合体、およびそれらの変性物をいう。共重合体としては比較的少量のイソプレンと共重合して得られる共重合体（通常ブチルゴムと呼ばれているもの）が好ましい。変性物としてはハロゲン化ブチルゴムや部分架橋ブチルゴムなどがある。特に好ましいブチル系ゴムは、通常ブチルゴムと呼ばれているイソブチレンとイソプレンとの共重合体、および部分架橋ブチルゴムである。

【0019】本発明における結晶性ポリオレフィンは、エチレンやプロピレンなどのオレフィンの単独重合体や他の単量体との共重合体、およびそれらの変性物であって、結晶性を有しているものをいう。重合体の構造はシンジオタクチック構造やアイソタクチック構造であることが好ましいが、他の構造を含んでいてもよい。オレフィンとしては特にエチレンとプロピレンが好ましい。

【0020】共重合体としては2種以上のオレフィンの共重合体やオレフィンと他の単量体との共重合体があり、エチレンやプロピレンと結晶性を阻害しない他の単量体との共重合体が適当である。また共重合体としては、交互共重合体やランダム共重合体よりもブロック共重合体が適当である。変性物としては酸無水物基、カルボキシル基、エポキシ基などの官能基を導入した結晶性ポリオレフィンがある。

【0021】本発明において特に好ましい結晶性ポリオレフィンは、実質的な単独重合体であるポリエチレンとポリプロピレンである。例えば、ポリエチレンとして低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレンなどを使用できる。

【0022】結晶性ポリオレフィンの結晶化度は30%以上が好ましく、特に50%以上が好ましい。例えば、通常の結晶性ポリオレフィンにおける代表的な結晶化度の値は、低密度ポリエチレンで50～60%、高密度ポリエチレンで75～90%、ポリプロピレンで55～65%である。分子量は特に限定されないが、数平均分子量でポリエチレンでは約20万～80万、ポリプロピレンでは約10万～40万のものが適当である。

【0023】このようにポリエチレンやポリプロピレンは高い結晶性を有するためブチル系ゴムより低透湿性であり、なかでもより低い溶融粘度を示すものは、ブチル系ゴム単独の場合に比較して、組成物の溶融粘度が低下し成形加工性が向上する。したがってまた、種々の無機フィラーを配合することが可能となってより高硬度のシール材を実現させ、また経済性の観点からも特にこれらが好ましい。

【0024】上記の樹脂組成物においてブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は2～50重量%であり、好ましくは5～40重量%である。結晶性ポリオレフィンの割合が2重量%未満では、ブチル系ゴムの高硬度化が難しく、また50重量%を超えると結晶性ポリオレフィンの性質が主体となりブチル系ゴムの特性が発現し難くなる。

【0025】無機フィラーが配合される場合、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は少なくてすむ。例えば、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対して約50重量部以上の無機フィラーが配合される場合には、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は2～20重量%で充分目的の効果が発揮される。

【0026】ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含む本発明における樹脂組成物に実質的に有効量の無機フィラーを配合できる。実質的に有効量とは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対して1重量部以上をいう。あまりに多量の無機フィラーを配合することは組成物の溶融粘度が上昇し、また、引張り強度や引き裂き強度が低下するため、配合量の上限は200重量部であり、好ましくは150重量部である。無機フィラー配合の場合の配合量の好ましい下限は10重量部である。

【0027】無機フィラーとしては、炭酸カルシウム、タルク、マイカ、カーボンブラックなど、通常無機フィラーとして用いられているものを、単独でまたは2種以上併用して使用できる。

【0028】本発明におけるスペーサ用樹脂組成物が少なくとも最終的な用途に使用される前において、それに含まれるブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとが高温下で混合されていることがきわめて有効である。この混合における高温とは結晶性ポリオレフィンの結晶融点以上の温度をいう。この混合温度はブチル系ゴムの分解点以下である必要があり、通常のブチル系ゴムの分解点である約300℃以下が[illegible]い。特に生産性などの面から200℃以下が好ましい。したがってまた結晶性ポリオレフィンの結晶融点も200℃以下が好ましい。

【0029】スペーサ用樹脂材料はその使用温度範囲においてはできるだけ硬度変化の少ないことがより好ましい。こうした要件を満足するためには結晶性ポリオレフィンとしては、通常の使用上限温度以上に結晶融点を有するものが好ましい。スペーサ用樹脂材料の通常の使用上限温度は約80℃である。

【0030】本発明においては結晶性ポリオレフィンが結晶相による凝集力で拘束されているために、ガラス転移温度を超えた温度領域でも非晶性樹脂に見られる急激な硬度低下や流動状態は結晶融点以下では起こらない。逆に、結晶融点を境に溶融粘度の著しい低下が見られ、ブチル系ゴムとの混練性を良好にならしめる効果が期待できる。

【0031】このような樹脂組成物には一般的にスペーサ用途に必要な樹脂材料に配合されうる乾燥剤および添加物を配合できる。ここでいう添加物としては、例えば、滑剤、顔料、帯電防止剤、粘着付与剤、可塑剤、老化防止剤、熱安定剤、酸化防止剤、シランカップリング剤などの加水分解性シリル基含有化合物、発泡剤、前記無機フィラー以外の充填材、などがある。特にこの樹脂組成物をスペーサに用いる場合、ゼオライト、シリカゲル、アルミナなどの乾燥剤、粘着付与剤、可塑剤、シランカップリング剤、各種安定剤の配合が好ましい。

【0032】特にゼオライトなどの乾燥剤を樹脂組成物中に5～30重量%配合することが好ましい。また、粘着付与効果と可塑化効果を与えるために、ポリイソブチレンを、ポリイソブチレン以外のブチル系ゴム100重量部に対し、200重量部以下、特には5～150重量部添加することも好ましい。

【0033】以上を総合すると、特に好ましいスペーサ用樹脂組成物の成分配合割合は、ブチル系ゴム30～55重量%、結晶性ポリオレフィン1～8重量%、無機フィラー15～30重量%、乾燥剤および添加物20～40重量%である（もちろん、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%である）。

【0034】上記の樹脂組成物は、少なくともブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを結晶性ポリオレフィンの結晶融点以上ブチル系ゴムの分解点以下の温度で混合して製造されることが好ましい。この混合温度は100～280℃、特に120～250℃、が好ましい。他の配合物や添加物は同時に混合してもよく、その混合前または後に混合してもよい。

【0035】本発明における組成物は実質的に熱可塑性の組成物であり、通常の溶融混合押出し機やニーダーなどの混合機で混合できる。さらに、混合操作と連続して成形を行うこともできる。また、組成物を製造してペレ

ット状などの成形材料とし、その後成形を行うこともできる。成形法としては押出し成形法や射出成形法などの溶融成形法を使用できる。

【0036】また成形操作と連続して成形物を、2枚以上のガラス板が対向配置された複層ガラス材料の端部に配置して複層ガラスを製造できる。この場合成形機から出た高温の組成物を用いることにより、ガラス板との高い接着性が得られる。また、アプリケータなどの装置を用いて組成物の温度低下を抑制しながら、複層ガラス材料に適用することもできる。この装置としては加熱可能なものが好ましい。

【0037】以上のように、本発明におけるスペーサ用樹脂組成物は、上記成分を混練して調製される。その調製に際しては、得られる樹脂組成物の25℃におけるJIS A硬度が90以下になるように必要成分を配合することが好ましい。90以下とする理由は次のとおりである。

【0038】JIS A硬度が90を超える熱可塑性樹脂を複層ガラスのスペーサとして用いようとした場合、クリープがほとんど起きないために、JIS R3209に示された耐久試験を実施した際、高温下で空気の膨張による応力がガラス板とスペーサとの接着界面にかかる。このため、接着力が不充分であれば剥離が発生し、仮に接着力が確保されている場合でもガラスが割れることがある。現在知られている接着剤でも、高温あるいは高圧をかけることによって、中空層が膨張する応力に耐えるだけの接着力を得ることは可能であるが、高温高圧をかけることによってガラスの破損が発生し、著しく生産性が低下するため、製造コスト低減を目標とする本発明の目的には沿わない。

【0039】一方、硬度が低すぎると複層ガラスの形状維持性に問題が生じるので、樹脂組成物の25℃におけるJIS A硬度は10以上になるように必要成分を配合することが好ましい。さらにJIS A硬度が10以上であっても硬度が比較的小さい場合、中空層の厚みが厚いと板ずれを引き起こすことがある。

【0040】一般的に用いられる複層ガラスは、その中空層の厚みが4～18mm程度である（6mmまたは12mmのものが多い）。したがって、硬度が比較的小さい場合には中空層の厚みが6mmのものでは板ずれが生じなくとも、12mmのものでは板ずれが生じてしまうことがある。上記硬度を40以上にすることによって、中空層の厚みが12mmのものであっても板ずれを生じないようにできる。このことから、本発明における複層ガラスにおいて熱可塑性樹脂スペーサのJIS A硬度は40以上が特に好ましい。

【0041】JIS A硬度が90を超える樹脂組成物をスペーサとして用いた複層ガラスは、ガラス板にかかる応力が大きい。そのため、JIS R3209で指定されている厚さ5mmおよび厚さ3mmのガラス板を用いたいずれの複層ガラスでも、加速耐久試験中にガラス割れが生じる。

【0042】これに対してJIS A硬度が90の樹脂組成物をスペーサとして用いた複層ガラスは、厚さ5mmのガラス板を用いた複層ガラスでは上記試験でガラス割れは発生しない。一方、厚さ3mmのガラス板を用いた複層ガラスは上記試験でガラス割れが発生する可能性があった。したがって、スペーサ用樹脂組成物のJIS A硬度の上限は90が好ましい。また、JIS A硬度が75である樹脂組成物をスペーサとして用いた複層ガラスは、厚さ5mmおよび厚さ3mmのガラス板を用いたいずれの複層ガラスでも、上記試験ではガラス割れは発生しない。現在一般的に使用されている複層ガラス用のガラス板は厚さが3mmのものであるので、スペーサ用樹脂組成物のJIS A硬度は40～75の範囲がより好適である。

【0043】また、樹脂組成物全体としての水蒸気透過係数が5000×10^{-13} cm³・cm／cm²・sec・Pa以下、さらに露点性能を維持するために水蒸気透過係数が500×10^{-13} cm³・cm／cm²・sec・Pa以下にすることが好ましい。

【0044】この場合、ブチル系ゴムは、その水蒸気透過係数が3000×10^{-13} cm³・cm／cm²・sec・Pa以下であることが好ましい。また、結晶性ポリオレフィンの水蒸気透過係数は3000×10^{-13} cm³・cm／cm²・sec・Pa以下が好ましく、500×10^{-13} cm³・cm／cm²・sec・Pa以下がさらに好ましい。

【0045】本発明の複層ガラスの構成に使用するガラス板は、通常、建材、車両などに広く使用されている窓、ドアなどのガラス板、強化ガラス、合わせガラス、金属網入りガラス、熱線吸収ガラス、さらには、熱線反射ガラス、低反射率ガラスなどのように、内面に金属や他の無機物を薄くコーティングしたガラス板、有機ガラスと呼ばれるアクリル樹脂板、ポリカーボネート板などであり、特に限定されない。また、複層ガラスは2枚のガラス板から構成されるものでもよく、3枚以上のガラス板から構成されるものでもよい。

【0046】本発明の複層ガラスは、必要に応じてスペーサが当接するガラス面に溶剤に溶解した接着剤を塗布し風乾しておき、図2に示すように2枚のガラス板1a，1bを所定間隔（例えば6mm，12mm）に保持し、次に、図3に示すような適当な直径のシリンダーを有する汎用の押出機を用い、前記本発明の樹脂組成物を、例えば150～200℃の温度で溶融させ、適当な先端形状をもつダイから押出ながら、2枚のガラス板間に介在させて冷却することによって形成される。

【0047】この複層化の方法は一例であって、本発明の複層ガラスの製造方法自体は上記方法に限定されず、例えば、前記樹脂組成物から所望形状のスペーサを

成形しておき、これを例えば2枚のガラス板で熱圧着させて形成してもよい。

【0048】

【実施例】次に実施例および比較例を挙げて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されない。

【0049】≪スペーサ用樹脂組成物の例≫まず、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であるスペーサ用樹脂組成物、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以下であるスペーサ用樹脂組成物に関する実施例を示す。下記組成例1～5は実施例であり、組成例6～10は比較例である。

【0050】【組成例1】表1に示す組成物において、乾燥剤を除く成分を混練した後に、4A型乾燥ゼオライトパウダーからなる乾燥剤を加え、さらに混練して乾燥剤を均一に分散させてJIS A硬度が65のスペーサ用樹脂組成物を得た。

【0051】【組成例2～10】組成例1と同様の手順で、表1に示す配合でゼオライト混合後におけるJIS A硬度が表2に示す値であるスペーサ用樹脂組成物を得た。

【0052】なお、これらの表において、ブチルゴムはムーニー粘度47 ML（1＋8）100℃であるブチルゴム、部分架橋ブチルゴムはムーニー粘度45 ML（1＋3）121℃である部分架橋ブチルゴム、HDP＊Eはメルトインデックス20、結晶融点130℃、結晶化度約80%である高密度ポリエチレンである。また、JIS A硬度はJIS K6301に準じて測定した。材料の組成の数値は重量%を表す。

【0053】≪複層ガラスの例≫次に、上記組成例1～10のスペーサ用樹脂組成物を用いて複層ガラスを作製した例を示す。下記例1～5は実施例であり、例6～10は比較例である。

【0054】【例1】組成例1のスペーサ用樹脂組成物を直径40mmのシリンダーを有するゴム用押出機を用いて、予めスペーサ当接部をプライマー処理したサイズ320×500mm，厚さ3mmまたは5mmの2枚のフロートガラス板の間に6mmまたは12mmの間隔を保ち、ガラス板の外周部にスペーサを押出成形して本発明の複層ガラスを得た。

【0055】【例2～10】例1と同様の手順で、組成例2～10のスペーサ用樹脂組成物を用い、他は例1と同様にして複層ガラスを得た。

【0056】【評価方法】

耐板ずれ試験：得られた各複層ガラスの片側のガラス板を固定し、他方のガラス板に13kgの荷重をかけ、25℃の温度条件で被荷重側のガラス板の下降移動量を測定した。その移動量が20分間で0．5mm以下であるものを合格とした。

加速耐久試験：JIS R3209にしたがい、厚さ6mmのスペーサを有する複層ガラスについて行った。

露点測定：JIS R3209に記載の装置と方法にしたがって測定した。

これらの測定結果を表2に示す。

【0057】

【表1】

	ブチル系ゴム				HDPE	無機フィラー		添加物	
	ブチルゴム	部分架橋ブチルゴム	PIB-A	PIB-B		タルク	カーボンブラック	粘着付与剤	ゼオライト
組成例1			25.6	17.0	4.2	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例2	29.8		4.3		12.8	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例3	15.6		15.6		15.8	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例4		21.3	4.2		21.3	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例5	45.9				0.9	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例6		46.6				10.6	10.6	10.6	21.4
組成例7		11.5			46.0	10.6	10.6		21.3
組成例8		5.6			51.9	10.6	10.6		21.3
組成例9		21.3	25.6			10.6	10.6	10.6	21.4
組成例10		8.5	4.2		34.0	10.6	10.6	10.6	21.3

【0058】

【表2】

11 12

	スペーサ硬度	複層ガラス評価項目							
		A	B	C	D	E	F	G	H
例1	65	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例2	75	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例3	90	a	a	a	a	合格	0	5	なし
例4	90	a	-55	-54	-40	合格	0	4	なし
例5	20	a	a	a	a	合格	0	0	c
例6	10	a	a	a	a	合格	0	0	c
例7	95	a	a	a	中止	b	0	4	なし
例8	95	a	a	a	中止	b	11	19	なし
例9	0	a	a	a	a	合格	0	0	あり
例10	95	-60	10	中止	中止	b	9	14	なし

【0059】表中、評価項目A～Hおよび評価結果a～cは次の意味を示す。

【0060】

A：初期露点（6体中最も露点が高いもの）、

B：JIS R3209加速耐久試験1類終了後露点（℃）、

C：JIS R3209加速耐久試験2類終了後露点（℃）、

D：JIS R3209加速耐久試験3類終了後露点（℃）、

E：JIS3類判定、

F：耐久試験中における厚み（5mm／6mm／5mm：ガラス板／中空層／ガラス板）の複層ガラスのガラス割れ（100体中）、

G：耐久試験中における厚み（3mm／6mm／3mm：ガラス板／中空層／ガラス板）の複層ガラスのガラス割れ（100体中）、

H：板ずれ、

a：露点－60℃以下、

b：スペーサが硬いため、ガラス割れが発生、

c：中空層の厚み12mmは板ずれあり、6mmは板ずれなし。

【0061】表2の結果より、スペーサをブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%である樹脂組成物、またはブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以下である樹脂組成物から成形することによって、複層ガラスのガラス割れを低減できるとともに、板ずれ等を防止できる。この場合、スペーサを上記の樹脂組成物のみで、露点の上昇がなく、複層ガラスの形状が保持された複層ガラスが得られる。

【0062】なお、例5の複層ガラスに用いたスペーサ用樹脂組成物は、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が98．08重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が1．92重量%である。一方、例5の複層ガラスでは中空層の厚みによっては若干の板ずれが生じることがある。このことから、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であるということは、上記組成例5の配合割合も実質的に含むものではあるが、組成例1～4のような配合割合が好ましいことがわかる。

【0063】

【発明の効果】本発明によれば、二次シール材を充填する作業を削減して、発生時間が不要であり、複層ガラス製造時の工程数を大幅に削減でき、かつ複層ガラスが高い生産性および低コストで提供される。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の複層ガラスの構成の一例を示す部分概略断面図

【図2】熱可塑性樹脂組成物からなるスペーサを用いて複層化する前の複層ガラスの構成を示す部分概略断面図

【図3】本発明において熱可塑性樹脂組成物の溶融に用いた押出機の概略図

【図4】従来の複層ガラスの構成の一例を示す断面図

【図5】従来の複層ガラスの構成の一例を示す断面図

【符号の説明】

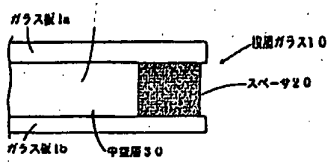
10：複層ガラス

1a，1b：ガラス板

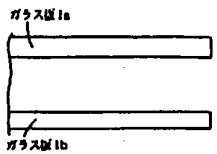
20：スペーサ

30：中空層

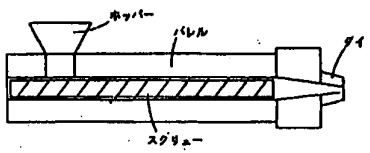
【図1】



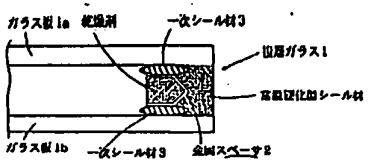
【図2】



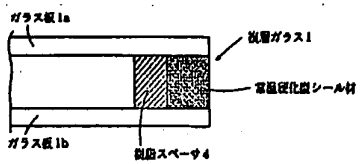
【図3】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

(72)発明者 松山 祥孝
神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地
旭硝子株式会社中央研究所内